

(19)



Europäisches Patentamt

European Patent Office

Office européen des brevets



(11)

EP 1 041 037 A2

(12)

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(43) Veröffentlichungstag:
04.10.2000 Patentblatt 2000/40

(51) Int. Cl.⁷: **C01B 3/36, C07C 11/24**

(21) Anmeldenummer: **00105993.0**

(22) Anmeldetag: **27.03.2000**

(84) Benannte Vertragsstaaten:
**AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LU
MC NL PT SE**
Benannte Erstreckungsstaaten:
AL LT LV MK RO SI

(30) Priorität: **29.03.1999 DE 19914226**

(71) Anmelder:
**BASF AKTIENGESELLSCHAFT
67056 Ludwigshafen (DE)**

(72) Erfinder:
• **Stapf, Dieter, Dr.
68199 Mannheim (DE)**

• **Pässler, Peter, Dr.
67069 Ludwigshafen (DE)**
• **Bachtler, Michael, Dr.
67435 Neustadt (DE)**
• **Scheidsteger, Olaf, Dr.
68163 Mannheim (DE)**
• **Bartenbach, Bernd, Dr.
67117 Limburgerhof (DE)**

(74) Vertreter:
**Isenbruck, Günter, Dr. et al
Patent- und Rechtsanwälte,
Bardehle-Pagenberg-Dost-Altenburg-Geissler-
Isenbruck
Theodor-Heuss-Anlage 12
68165 Mannheim (DE)**

(54) Verfahren zur Herstellung von Acetylen und Synthesegas

(57) Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Acetylen und Synthesegas durch thermische Behandlung eines Ausgangsgemisches, das einen oder mehrere Kohlenwasserstoffe und außerdem molekularen Sauerstoff und/oder eine oder mehrere das Element Sauerstoff aufweisende Verbindungen enthält, wobei das Ausgangsgemisch aufgeheizt, in einem Reaktor zur Reaktion gebracht und anschließend abgekühlt wird. Das Verfahren hat die Besonderheit, daß das Ausgangsgemisch höchstens bis auf maximal 1400°C aufgeheizt wird. Die Durchführung des Verfahrens ist dann mit einem vergleichsweise geringem Energieaufwand möglich.

EP 1 041 037 A2

Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Acetylen und Synthesegas.

[0002] Zahlreiche Verfahren zur unkatalysierten Herstellung von Acetylen basieren auf der Pyrolyse oder der partiellen Oxidation von Kohlenwasserstoffen. Als Einsatzstoffe kommen dabei kurzkettige Spezies, im C-Bereich von Methan, bis hin zu langkettigen Verbindungen des Rohöls in Frage. Eine Prozeßentwicklung, das Tauchflammenverfahren, ermöglicht es, zusätzlich hoch siedende Fraktionen, wie Rückstandsöle, einzusetzen. Prinzipiell haben bei pyrolytischen oder oxidativen Herstellungsverfahren von Acetylen thermodynamische und kinetische Parameter einen entscheidenden Einfluß auf die Wahl der Reaktionsbedingungen. Wichtige Voraussetzungen entsprechender Prozesse sind eine schnelle Energiezufuhr auf hohem Temperaturniveau - die maximale Reaktionstemperatur muß mehr als 1400°C betragen - äußerst kurze Verweilzeiten der Einsatzstoffe bzw. Reaktionsprodukte von 10^{-2} bis 10^{-3} Sekunden, niedriger Partialdruck des Acetylens und schnelles Absehrecken der entstandenen Gase. Acetylen fällt bei der Pyrolyse und bei der partiellen Oxidation in einem Gasgemisch, dem sogenannten Spaltgas an. Dabei enthält das Spaltgas normalerweise etwa 5 bis 20 Vol.-% Acetylen. Letzteres wird durch selektive Lösungsmittel, wie N-Methylpyrrolidon, Dimethylformamid, Kerosin, Methanol oder Aceton, aus dem Spaltgas extrahiert und in weiteren Stufen gereinigt.

[0003] Die einzelnen Verfahren, bei denen Acetylen hergestellt wird, unterscheiden sich insbesondere hinsichtlich der Erzeugung der hohen Reaktionstemperaturen. Dabei spielen die Bereitstellung sowie die Übertragung der Wärmeenergie die entscheidende Rolle. Vom Prinzip her lassen sich zwei Verfahrensweisen unterscheiden:

A allotherme Pyrolyseverfahren mit zumeist elektrischer Aufheizung

B autotherme Verfahren, bei denen die Wärme aus der Teilverbrennung des Einsatzproduktes zur oxidativen Pyrolyse genutzt wird

Zu A:

[0004] Hierzu gehört das Lichtbogenverfahren. Nach diesem Verfahren werden Kohlenwasserstoffe bis zu einem Siedepunkt von 200°C mit Hilfe eines ca. 1 m langen stabilisierten Lichtbogens pyrolysiert, der in seinem Zentrum eine Temperatur von bis zu 20.000°C aufweist. Am Ende des „Brenners“ hat das Gasgemisch bei ca. 1,2 bar Betriebsdruck eine Temperatur von ca. 1800°C, die durch Einspritzen von Wasser schnell auf ca. 100°C abgesenkt wird. Die Verweilzeit in der Brennerzone beträgt einige Millisekunden, die Ausbeuten an Acetylen bzw. Ethylen (bei Ethylen in der Regel nur bei Vorquenchen mit Kohlenwasserstoffen) erreichen 1,0 bzw.

0,42 t pro 1,8 t eingesetzten Kohlenwasserstoff Ein anderes Lichtbogenverfahren wurde in zwei großtechnischen Versuchsanlagen erprobt. H_2 als Wärmeträger wird zunächst in einem Lichtbogen auf 3000 bis 4000°C erhitzt und dabei zu 30 bis 65 % zu Atomen dissoziiert. Im anschließenden Reaktor können dann alle Arten von Kohlenwasserstoffen von Methan bis hin zum Rohöl in das Plasma eingedüst und gespalten werden. Das Spaltgas wird schnell abgeschreckt und getrennt. Beim Einsatz von Leichtbenzin können Acetylen-Ethylen-Ausbeuten von etwa 80 Gew.-% erhalten werden, wenn Nebenprodukte in den Spaltprozeß zurückgeführt werden. Die Acetylen-Konzentration im Spaltgas erreicht fast 14 Vol.-%.

Zu B:

[0005] Ein dazu entwickeltes autothermes Spaltverfahren ist für Einsatzprodukte wie Methan, Flüssiggas oder Leichtbenzin geeignet. Die überwiegende Zahl der weltweit gebauten Anlagen basiert auf Erdgas als Einsatzprodukt; nur wenige verwenden Naphta als Rohstoff. Im technischen Prozeß werden beispielsweise Methan und Sauerstoff getrennt auf 500 bis 600°C vorgeheizt, gemischt und in einem speziellen Brenner unter Flammenbildung zur Reaktion gebracht. Das Verhältnis O_2/CH_4 wird mit etwa 1:2 so eingestellt, daß nur eine unvollständige Verbrennung erfolgen kann. In der Flamme findet sowohl die exotherme Oxidation eines Teils des CH_4 als auch die endotherme Dehydromerisierung des CH_4 in Acetylen und Wasserstoff statt. Nach einer Verweilzeit von wenigen Millisekunden schreckt man das Reaktionsgas durch Einspritzen von Wasser oder Quenchöl ab, da sonst Acetylen zu Ruß und Wasserstoff zerfallen würde. Die Bildung von Ruß kann jedoch nicht vollständig verhindert werden - pro 100 kg Acetylen fallen etwa 5 kg Ruß an. Die Abtrennung des Acetylens wird üblicherweise mit einem Extraktionsmittel, wie N-Methylpyrrolidon oder Dimethylformamid, vorgenommen. Fraktionierte Desorption und geeignete Rektifikationsstufen dienen dann zur Abtrennung von mitgelösten Begleitkomponenten. Im Spaltgas beträgt der Volumenanteil des Acetylens etwa 8 %. Die Hauptkomponenten sind Wasserstoff mit 57 Vol.% und Kohlenmonoxid mit 26 Vol. %. In diesem Verhältnis stellen die Hauptkomponenten ein gut einsetzbares Synthesegas dar. Die autotherme Herstellung von Acetylen ist stets mit der Herstellung von Synthesegas verbunden.

[0006] Im folgenden sollen einige verwendete Begriffe definiert werden:

[0007] Mit Aufheizen sollen alle die Maßnahmen und Prozesse verstanden werden, die zu einer Temperaturerhöhung führen. Ein Medium, z.B. ein Ausgangsgemisch zur Herstellung von Acetylen und Synthesegas, kann beispielsweise durch Zünden (dadurch wird eine exotherme Reaktion ausgelöst), durch die Zufuhr von Energie (z.B. von außen) oder

durch exotherme Reaktionen bei gleichzeitiger oder vorausgehender Zufuhr von Energie (z.B. durch Vorheizen), aufgeheizt werden. Unter Ausgangsgemisch wird das Gemisch verstanden, das für den Prozeß der Acetylen/Synthesegas-Herstellung eingesetzt wird. Dieses kann prinzipiell variieren, und es enthält je nach gewünschtem Synthesegas entsprechend verschiedene Ausgangsstoffe. Es ist in dem Ausgangsgemisch stets molekularer Sauerstoff und/oder eine oder mehrere das Element Sauerstoff enthaltende Verbindung enthalten. Molekularer Sauerstoff kann dem Ausgangsgemisch in Form von Luft, Luft/Sauerstoff-Mischungen oder reinem Sauerstoff bereitgestellt werden. Die das Element Sauerstoff enthaltenden Verbindungen können als Wasserdampf und/oder Kohlendioxid bereitgestellt werden. Außerdem enthält das Ausgangsgemisch einen oder mehrere Kohlenwasserstoffe. Dabei enthält das Ausgangsgemisch häufig, insbesondere dann wenn Methanol-Synthesegas hergestellt werden soll, zu einem großen Teil Erdgas, aber auch zum Beispiel Flüssiggas wie Propan oder Butan, Leichtbenzin wie Pentan oder Hexan, Benzol oder andere Aromaten, Pyrolysebenzin oder Destillationsrückstände aus der Erdölraffinerie. Die Umwandlung des Ausgangsgemischs in ein Acetylen/Synthesegas enthaltendes Gemisch wird als thermische Behandlung bezeichnet. Die zugrundeliegenden Reaktionstypen sind vorwiegend Verbrennung (Totaloxidation), partielle Verbrennung (partielle Oxidation bzw. oxidative Pyrolyse) und Pyrolysereaktionen (Reaktionen ohne die Beteiligung von Sauerstoff). Unter indirekter Kühlung wird das Abkühlen des Reaktionsgemischs verstanden, wenn das eingesetzte Kühlmittel dabei nicht in direkten Kontakt mit dem Reaktionsgemisch gelangt. Umgekehrt tritt beim direkten Quench das Kühlmittel direkt in Kontakt mit dem Reaktionsgemisch.

[0008] Den bekannten Acetylen-Herstellungsmethoden ist gemeinsam, daß die Reaktionstemperatur über 1400°C liegt und daß die Verweilzeiten im Millisekundenbereich liegen. Zur Vermeidung von Folgereaktionen (beispielsweise Rußbildung) muß das Reaktionsgas dann schnell durch direkten Quench abgeschreckt werden, wobei ein Quenchmittel direkt eingespritzt wird. Dabei kühlt sich das entsprechende Gemisch je nach eingesetztem Quenchmittel verschieden stark ab - bei Öl als Quenchmittel auf ca. 300°C und bei Wasser als Quenchmittel auf ca. 100°C. Aus dem resultierenden Gemisch wird das Acetylen durch selektive Lösungsmittel ausgewaschen.

[0009] Vorstehendes Prinzip der Acetylen/Synthesegas-Herstellung ist in der DE-A-44 22 815 offenbart. Dabei wird das Ausgangsgemisch im Anschluß an die getrennte Vorwärmung in einer Mischkammer erzeugt. Die Reaktion findet anschließend an einem Brennerblock in einem Brennraum statt. Der Abbruch der Reaktion erfolgt in einem Quenchbehälter. Da Acetylen bei hohen Temperaturen thermodynamisch instabil ist und zum schnellen Zerfall neigt, muß das acetylenhaltige

Produktgemisch schlagartig abgekühlt werden (durch direkten Quench) - eine indirekte Kühlung wäre dabei zu träge.

[0010] Das bisherige Prinzip der Acetylen-Synthesegasherstellung, wie in der DE-A-44 22 815 beschrieben, ist mit erheblichen Nachteilen behaftet. Ein wesentlicher Nachteil ist es, daß durch das Quenchen (direkter Quench) eine optimale Rückgewinnung der Energie unmöglich wird. Die entsprechende Quenchflüssigkeit weist nach ihrem Einsatz typischerweise Temperaturen von höchstens 300°C auf, d.h. die Energie wird auf relativ niedrigem Temperaturniveau (ca. 200 bis 300°C) zurückgewonnen, obwohl sie bei hohen Temperaturniveau (ca. 1500 bis 1600°C) anfällt. Der Einsatzbereich einer solchen, relativ kühlen Flüssigkeit zu Heizzwecken ist stark eingeschränkt. Außerdem ist die Quenchflüssigkeit in der Regel stark mit Rußkoks und aromatische Komponenten belastet, so daß eine weitere Verwendung erschwert wird. Der hohe energetische Aufwand, der für die Erzeugung der höher als 1400°C liegenden Reaktionstemperatur notwendig ist, ist ein weiterer Nachteil. Ein weiteres Problem beim bisherigen Verfahren ergibt sich aus der starken Rußbildung, die bei den hohen Prozeßtemperaturen besonders stark ist. Die Rußbildung macht sich nicht nur dadurch negativ bemerkbar, daß die Ausbeute an Synthesegas und Acetylen reduziert wird, sondern auch durch die Verschmutzungsproblematik der eingesetzten Apparaturen. Aufwendig ist auch die Reinigung der u.a. durch Ruß bzw. Rußkoks verschmutzten Quenchflüssigkeit und des Spaltgasgemisches - Reinigungs- bzw. Trennverfahren müssen daher meist nachgeschaltet werden.

[0011] Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, den Energiebedarf der Acetylen/Synthesegas-Herstellung zu reduzieren und außerdem die Möglichkeit einer effektiveren Rückgewinnung der eingesetzten Energie zu schaffen. Außerdem soll die bei dem Verfahren entstehende Rußmenge gering gehalten werden.

[0012] Die Lösung dieser Aufgabe geht aus von dem Verfahren zur Herstellung von Acetylen und Synthesegas durch thermische Behandlung eines Ausgangsgemisches, das einen oder mehrere Kohlenwasserstoffe und außerdem molekularen Sauerstoff und/oder ein oder mehrere das Element Sauerstoff aufweisende Verbindungen enthält, wobei das Ausgangsgemisch aufgeheizt, in einem Reaktor zur Reaktion gebracht und anschließend abgekühlt wird. Das erfindungsgemäße Verfahren ist dadurch gekennzeichnet, daß das Ausgangsgemisch höchstens bis auf maximal 1400°C aufgeheizt wird.

[0013] Wie vorstehend bereits erläutert, sollen unter Aufheizen alle Maßnahmen und Prozesse verstanden werden, die zu einer Temperaturerhöhung des Ausgangsgemischs führen. Das Ausgangsgemisch zur Herstellung von Acetylen und Synthesegas kann beispielsweise durch Zünden - dadurch wird eine exotherme Reaktion ausgelöst - durch die Zufuhr von

Energie (z.B. durch Heizen von außen) oder durch exotherme Reaktionen bei gleichzeitiger oder vorausgehender Zufuhr von Energie (z.B. durch Vorheizen), aufgeheizt werden. Das Ausgangsgemisch bzw. aus dem Ausgangsgemisch entstehende Reaktionsmischungen weisen demnach erfindungsgemäß während des Verfahrens Temperaturen von höchstens maximal 1400°C auf.

[0014] Im Gegensatz zu bekannten Verfahren ist die mittlere Verweilzeit in dem Reaktor vergleichsweise lang - sie beträgt in der Regel mindestens 10 ms.

[0015] In einer bevorzugten Ausführungsform wird durch indirekte Kühlung abgekühlt.

[0016] Die thermische Behandlung findet in der Regel bei Temperaturen zwischen 1200°C und 1400°C statt. Besonders bevorzugt ist dabei der Bereich bis 1350°C. Dabei wird meist ausschließlich die in dem Reaktor freiwerdende Reaktionswärme genutzt, so daß auf eine elektrische oder thermische Vorheizung in der Regel weitestgehend verzichtet werden kann.

[0017] „Schnelles Quenchen“ wird in der Literatur als Voraussetzung für das Erreichen von akzeptablen Acetylen-Ausbeuten angesehen [Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, 5th Rev. Ed., Vol. A1, Verlag Chemie, Weinheim, 1985, Seite 106]. Es soll aber nur deshalb schnell gequenchet werden, da es als notwendig angesehen wird, die Reaktion bei hohen Temperaturen (Temperaturen höher als 1400°C) durchzuführen - müssen die Verweilzeiten bei den hohen Temperaturen kurz gehalten werden, muß entsprechend schnell abgekühlt werden. Daher ist nicht nur die Tatsache, daß die Acetylen/Synthesegas-Herstellung auch bei vergleichsweise langsamer indirekter Kühlung erfolgen kann, sondern auch die Tatsache, daß die Reaktion bei Temperaturen unterhalb von 1400°C durchgeführt werden kann, überraschend.

[0018] Der Vorteil, der sich aus der niedrigeren Prozeßtemperatur ergibt, ist einmal, daß die Rußbildung nur gering ist. Andererseits ist der Energiebedarf deutlich niedriger als bei den bisherigen Verfahren. Eine effektivere Rückgewinnung der Energie ist bei dem erfindungsgemäßen Verfahren möglich, da bevorzugt indirekt gekühlt wird. Bei indirekter Kühlung kann durch den Einsatz eines geeigneten Wärmetauschers wertvoller Hochdruckdampf erzeugt werden (mit diesem kann man z.B. eine Turbine antreiben). Es kann ein sauberes Kühlmittel, das nach dem Einsatz höhere Temperaturen aufweist als entsprechende Kühlmedien bei den Verfahren nach dem Stand der Technik, eingesetzt werden. Es kann auch durch kombinierte Anwendung von direktem Quench (Vorquenchen) und indirekter Kühlung abgekühlt werden, wobei dann durch direkten Quench (Vorquenchen) in der Regel höchstens auf 1000°C abgekühlt wird.

[0019] Molekularer Sauerstoff wird dem Ausgangsgemisch meist in Form von Luft oder Luft/Sauerstoffmischungen bereitgestellt. Das Element Sauerstoff enthaltende Verbindungen werden in der Regel als Was-

serdampf und/oder als Kohlendioxid bereitgestellt. Meist wird dabei rezykliertes Kohlendioxid eingesetzt. Es wird dabei Kohlendioxid, das in dem abgekühlten Reaktionsgemisch enthalten ist, bereitgestellt, wobei zu diesem Zweck in der Regel das gesamte Kohlendioxid enthaltende Reaktionsgemisch rezykliert wird.

[0020] Wie vorstehend bereits erwähnt, ist die Zusammensetzung des Ausgangsgemisches variabel. Die Zusammensetzung des eingesetzten Ausgangsgemisches richtet sich in der Regel nach der Verwendung des herzustellenden Spaltgases. Wichtige Spaltgase, die mit dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellt werden können, sind beispielsweise Acetylen/Methanol-Synthesegas, Acetylen/Ammoniak-Synthesegas, Acetylen/Wasserstoff-Reichgas, Acetylen/Kohlenmonoxid-Reichgas, Acetylen/Oxogas, Acetylen/Ethylen-Synthesegas. Entsprechend dem herzustellenden Spaltgas muß die Zusammensetzung des Ausgangsgemisches gewählt werden. Neben Erdgas können Flüssiggas (Propan, Butan), Leichtbenzin, Aromaten, Pyrolysebenzin-Öl (aus Crackprozessen) und/oder Vakuumdestillationsrückstände aus Erdölraffinerien verwendet werden. Ausgangsgemische können (bis zu etwa 10 Vol.-%) rückgeführtes Spaltgas, Recyclegas wie Rest-Methan aus der Spaltgasreinigung, Restgase aus anderen Prozessen oder Synthesegas beinhalten. Dies kann zum Beispiel dadurch erreicht werden, daß eine Teilmenge des abgekühlten Reaktionsgemisches rezykliert wird. Beim Einsatz höherer Kohlenwasserstoffe, insbesondere bei den bei Umgebungstemperatur flüssigen Kohlenwasserstoffen, kann sich eine Beimischung von bis zu 50 Vol.-%, bevorzugt bis zu 25 Vol.-% Wasserdampf zum Ausgangsgemisch günstig auf die Temperaturführung des Prozesses und auf den Wasserstoffanteil im Spaltgas auswirken. Sauerstoff kann dem Ausgangsgemisch in Form von Luft bereitgestellt werden. In diesem Fall erhält man Ammoniak-Synthesegas (ideale Zusammensetzung Wasserstoff zu Stickstoff 3:1) und Acetylen. Wasserdampfzugabe zu Erdgas mit hohem Methananteil führt bevorzugt zu Acetylen/Wasserstoff-Reichgas. Die Verwendung höherer Kohlenwasserstoffe führt zu Acetylen/Kohlenmonoxid-Reichgas.

[0021] Die Reaktion zur Herstellung von Acetylen/Synthesegas kann mit dem erfindungsgemäßen Verfahren bei beliebigem Druck, bevorzugt bei Atmosphärendruck durchgeführt werden. Als Reaktoren eignen sich bevorzugt Flammenreaktoren, regenerative Reaktoren, rekuperative Reaktoren oder Strömungsreaktoren, insbesondere Rohrreaktoren. Eingesetzte Flammenreaktoren weisen häufig einen Drallbrenner oder einen Brennerblock mit anschließendem Brennraum auf. In Frage kommende Flammenreaktoren arbeiten beispielsweise mit Vormischflamme oder Diffusionsflamme. Eingesetzte Strömungsreaktoren enthalten häufig eine Vormischflamme. Die Verweilzeit in dem Reaktor ist in der Regel kürzer als 1 s - jedoch die Abkühlphase in der Regel länger als diejenigen

Abkühlphasen, die bei bekannten Verfahren realisiert werden. Prinzipiell ist natürlich bei dem erfindungsgemäßen Verfahren auch eine direkte Kühlung, das heißt ein direkter Quench möglich. Dies kann beispielsweise durch die Eindüsung von Quenchöl, Wasser, Dampf oder kalten Rückführgasen durchgeführt werden. Häufig wird durch direkten Quench nur auf höchstens 1000°C abgekühlt. Bei der Verwendung von Kohlenwasserstoffen als Quenchmittel können gleichzeitig Crackprozesse eingeleitet werden (Crackung der in dem Quenchmittel enthaltenen Kohlenwasserstoffe). Die indirekte Kühlung mit einem Wärmetauscher ist jedoch in der Regel wesentlich wirtschaftlicher. Mit dem aufgeheizten Kühlmittel kann beispielsweise ein Hochdruckdampferzeuger oder ein Einsatzstoffvorwärmer betrieben werden. Im Prinzip kann zum Zweck der indirekten Kühlung jeder beliebige Wärmetauschertyp verwendet werden.

[0022] Falls Methanol-Synthesegas erhalten werden soll, ist eine bevorzugte Zusammensetzung des Ausgangsgemisches: 60 bis 70 Vol.-% Erdgas (Methan-Anteil: ca. 90 Vol.-%) und Sauerstoff als verbleibende Volumenprozent. Das optimale Methan: Sauerstoff-Verhältnis beträgt somit ca. 2:1.

[0023] Eine weitere bevorzugte Zusammensetzung des Ausgangsgemisches ist, falls Methanol-Synthesegas erhalten werden soll: 30 bis 50 Vol.-% molekularer Sauerstoff, 30 bis 50 Vol.-% Wasserdampf und als verbleibende Volumenprozent Kohlenwasserstoffe mit einem hohen C : H - Verhältnis (C : H - Verhältnis von mindestens 0,5 - z.B. Aromaten).

[0024] Im folgenden soll die Erfindung anhand eines Ausführungsbeispiels näher erläutert werden.

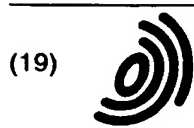
Ausführungsbeispiel:

[0025] Erdgas sowie Sauerstoff werden so vorgemischt, daß sich ein Methan : Sauerstoff-Verhältnis von ca. 2:1 ergibt. Das Eduktgemisch hat dann folgende Zusammensetzung: Methan 63,5 Vol.-%, Sauerstoff 34,3 Vol.-%, Rest: höhere Kohlenwasserstoffe und Stickstoff. Das vorstehende Gemisch tritt mit einer Temperatur von ca. 25°C in einen bei Atmosphärendruck betriebenen Strömungsrohrreaktor ein. Die maximale Prozeßtemperatur wird durch geeignete Temperaturführung in dem Reaktor auf ca. 1300°C eingestellt. Anschließend tritt das Spaltgas in einen Wärmetauscher ein, wo es innerhalb von ca. 0,3 sec. auf unter 300°C abgekühlt wird. Dabei kann Hochdruckdampf erzeugt werden. Vor der weiteren Aufarbeitung ergibt sich folgende wasserfreie Spaltgaszusammensetzung: Methan 10,4 Vol.-%, Sauerstoff 0 Vol.-%, Acetylen 9,1 Vol.-%, Kohlenmonoxid 25,8 Vol.-%, Wasserstoff 50,2 Vol.-%, Kohlendioxid 3,4 Vol.-%, Rest: Stickstoff, sowie geringe Mengen Ruß und höhere Kohlenwasserstoffe.

[0026] Der Versuch zeigt, daß sich das erfindungsgemäße Verfahren zu Herstellung von Acetylen und Synthesegas eignet.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Acetylen und Synthesegas durch thermische Behandlung eines Ausgangsgemisches, das einen oder mehrere Kohlenwasserstoffe und außerdem molekularen Sauerstoff und/oder eine oder mehrere das Element Sauerstoff aufweisende Verbindungen enthält, wobei das Ausgangsgemisch aufgeheizt, in einem Reaktor zur Reaktion gebracht und anschließend abgekühlt wird, dadurch gekennzeichnet, daß das Ausgangsgemisch höchstens bis auf maximal 1400°C aufgeheizt wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß durch indirekte Kühlung abgekühlt wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß durch kombinierte Anwendung von indirekter Kühlung und direktem Quench abgekühlt wird.
4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß durch direkten Quench höchstens auf 1000°C abgekühlt wird.
5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß das Ausgangsgemisch ausschließlich durch die in dem Reaktor frei werdende Reaktionswärme aufgeheizt wird.
6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Reaktion bei beliebigem Druck, bevorzugt bei Atmosphärendruck, abläuft.
7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß der Reaktor als Flammerenreaktor, als regenerativer Reaktor, als rekuperativer Reaktor oder als Strömungsreaktor, insbesondere als Rohrreaktor, ausgebildet ist.
8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß eine Teilmenge des abgekühlten Reaktionsgemisches rezykliert wird.
9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß molekularer Sauerstoff dem Ausgangsgemisch in Form von Luft oder Luft/Sauerstoff-Mischungen bereitgestellt wird.
10. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß die das Element Sauerstoff enthaltenden Verbindungen als Wasserdampf und/oder Kohlendioxid bereitgestellt werden.



(19)

Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets



(11)

EP 1 041 037 A3

(12)

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(88) Veröffentlichungstag A3:
24.04.2002 Patentblatt 2002/17

(51) Int Cl.7: **C01B 3/36**, **C07C 11/24**,
C07C 2/78

(43) Veröffentlichungstag A2:
04.10.2000 Patentblatt 2000/40

(21) Anmeldenummer: 00105993.0

(22) Anmeldetag: 27.03.2000

(84) Benannte Vertragsstaaten:
AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LU
MC NL PT SE
Benannte Erstreckungsstaaten:
AL LT LV MK RO SI

(30) Priorität: 29.03.1999 DE 19914226

(71) Anmelder: **BASF AKTIENGESELLSCHAFT**
67056 Ludwigshafen (DE)

(72) Erfinder:
• **Stapf, Dieter, Dr.**
68199 Mannheim (DE)

- **Pässler, Peter, Dr.**
67069 Ludwigshafen (DE)
- **Bachtler, Michael, Dr.**
67435 Neustadt (DE)
- **Scheidsteger, Olaf, Dr.**
68163 Mannheim (DE)
- **Bartenbach, Bernd, Dr.**
67117 Limburgerhof (DE)

(74) Vertreter: **Isenbruck, Günter, Dr. et al**
Patent- und Rechtsanwälte,
Bardehle-Pagenberg-Dost-Altenburg-Geissler-I
senbruck
Theodor-Heuss-Anlage 12
68165 Mannheim (DE)

(54) Verfahren zur Herstellung von Acetylen und Synthesegas

(57) Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Acetylen und Synthesegas durch thermische Behandlung eines Ausgangsgemisches, das einen oder mehrere Kohlenwasserstoffe und außerdem molekularen Sauerstoff und/oder eine oder mehrere das Element Sauerstoff aufweisende Verbindungen enthält, wobei das Ausgangsgemisch aufgeheizt, in einem Reaktor zur

Reaktion gebracht und anschließend abgekühlt wird. Das Verfahren hat die Besonderheit, daß das Ausgangsgemisch höchstens bis auf maximal 1400°C aufgeheizt wird. Die Durchführung des Verfahrens ist dann mit einem vergleichsweise geringem Energieaufwand möglich.

EP 1 041 037 A3



Europäisches
Patentamt

EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung
EP 00 10 5993

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int.Cl.7)
X	US 2 679 543 A (SMITH DORSEY WILLIAM) 25. Mai 1954 (1954-05-25) * Spalte 6, Zeile 64 - Spalte 7, Zeile 5 * * Spalte 4, Zeile 41 - Zeile 75 * * Spalte 7, Zeile 60 - Spalte 8, Zeile 1 * * Beispiel * * Abbildung 1 *	1-4,7-9	C01B3/36 C07C11/24 C07C2/78
X	US 2 697 032 A (JONES EDWARD L) 14. Dezember 1954 (1954-12-14) * Spalte 1, Zeile 71 - Spalte 2, Zeile 54 * * Abbildung 1 *	1-4,6,7,9	
X	US 2 764 554 A (SELLERS FREDERICK B ET AL) 25. September 1956 (1956-09-25) * Spalte 1, Zeile 40 - Spalte 2, Zeile 14 * * Spalte 3, Zeile 26 - Zeile 35 * * Abbildung *	1,4,6,7,9	
Y		5	
A	* Spalte 2, Zeile 53 - Spalte 3, Zeile 5 *	10	RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int.Cl.7)
X	US 2 884 472 A (BLUDWORTH JOSEPH E) 28. April 1959 (1959-04-28) * Spalte 3, Zeile 28 - Spalte 4, Zeile 46 * * Abbildungen 1,2,5 *	1,4,7,8	C07C C01B
Y	EP 0 287 380 A (BRITISH PETROLEUM CO PLC) 19. Oktober 1988 (1988-10-19) * Seite 1, Zeile 14 - Zeile 19 * * Seite 2, Zeile 5 - Zeile 7 *	5	
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt			
Recherchenort MÜNCHEN		Abschlußdatum der Recherche 26. Februar 2002	Prüfer Harf-Bapin, E
KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A : technologischer Hintergrund O : mündliche Offenbarung P : Zwischenliteratur		T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument L : aus anderen Gründen angeführtes Dokument & : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument	

EPO FORM 1503 02/82 (P4/C03)

**ANHANG ZUM EUROPÄISCHEN RECHERCHENBERICHT
 ÜBER DIE EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG NR.**

EP 00 10 5993

In diesem Anhang sind die Mitglieder der Patentfamilien der im obengenannten europäischen Recherchenbericht angeführten Patentdokumente angegeben.
 Die Angaben über die Familienmitglieder entsprechen dem Stand der Datei des Europäischen Patentamts am
 Diese Angaben dienen nur zur Unterrichtung und erfolgen ohne Gewähr.

26-02-2002

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
US 2679543	A	25-05-1954	KEINE		
US 2697032	A	14-12-1954	US	2672488 A	16-03-1954
US 2764554	A	25-09-1956	GB	800888 A	03-09-1958
			FR	1153832 A	21-03-1958
US 2884472	A	28-04-1959	KEINE		
EP 0287380	A	19-10-1988	AU	1450188 A	20-10-1988
			CN	88102193 A	23-11-1988
			EP	0287380 A2	19-10-1988
			JP	63275693 A	14-11-1988
			NO	881619 A	17-10-1988

EPO FORM P0461

Für nähere Einzelheiten zu diesem Anhang : siehe Amtsblatt des Europäischen Patentamts, Nr. 12/82